

# MEASUREMENT METHOD AND CONTROL METHOD OF GASEOUS CARBON DIOXIDE CONCENTRATION OF ARTIFICIAL CARBONATE SPRING, AND APPARATUS FOR PRODUCING ARTIFICIAL CARBONATE SPRING

Publication number: JP2003066023

Publication date: 2003-03-05

Inventor: SAKAKIBARA MASANORI; SAKURAI EIZO; TASAKA HIROSHI; NAGASAKA YOSHITOMO; SANAI KATSUYA

Applicant: MITSUBISHI RAYON CO

Classification:

- International: A61H33/02; B01F1/00; G01N27/416; G01N31/00; G01N33/18; A61K33/00; A61P9/08; A61P43/00; A61H33/02; B01F1/00; G01N27/416; G01N31/00; G01N33/18; A61K33/00; A61P9/00; A61P43/00; (IPC1-7): A61K33/00; A61P9/08; A61P43/00; G01N31/00; A61H33/02; B01F1/00; G01N27/416; G01N33/18

- european:

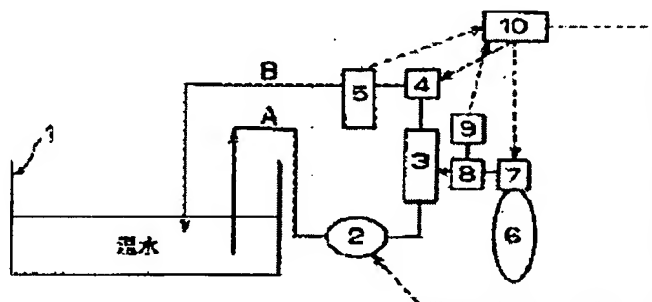
Application number: JP20010250259 20010821

Priority number(s): JP20010250259 20010821

Report a data error here

## Abstract of JP2003066023

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an apparatus which can calculate the concentration of gaseous carbon dioxide dissolved in a warm water by a simple method and can produce in a simple way a warm water having a desired carbon dioxide concentration, namely a carbonate spring with a valid saturated carbon dioxide concentration or more, from 1,000 ppm to 1,400 ppm, as an artificial carbonate spring. **SOLUTION:** In an apparatus for producing an artificial carbonate spring, which is provided with a gaseous carbon dioxide dissolution device and a pH measurement device, the apparatus performs the steps of: dissolving a predetermined amount of carbon dioxide in a warm water for an artificial carbonate spring so that the warm water has a saturated carbon dioxide concentration or less; calculating the carbon dioxide concentration based on a pH value of the warm water after the dissolution and the amount of dissolved carbon dioxide; obtaining a correlation equation between the pH value and the carbon dioxide concentration; and producing the artificial carbonate spring having a target carbon dioxide concentration using the obtained correlation equation.



- |            |            |
|------------|------------|
| 1…浴槽       | 7…炭酸ガス圧調整器 |
| 2…循環ポンプ    | 8…流量調整器    |
| 3…炭酸ガス溶解器  | 9…流量計      |
| 4…炭酸ガス圧調整器 | 10…制御装置    |
| 5…pH測定器    | A…導管       |
| 6…炭酸ガスボンベ  | B…戻り管      |

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-66023

(P2003-66023A)

(43) 公開日 平成15年3月5日 (2003.3.5)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
G 0 1 N 31/00 .		G 0 1 N 31/00	E 2 G 0 4 2
A 6 1 H 33/02		A 6 1 H 33/02	A 4 C 0 8 6
B 0 1 F 1/00		B 0 1 F 1/00	B 4 C 0 9 4
G 0 1 N 27/416		G 0 1 N 33/18	C 4 G 0 3 5
33/18		A 6 1 K 33/00	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-250259(P2001-250259)

(22) 出願日 平成13年8月21日 (2001.8.21)

(71) 出願人 000006035

三菱レイヨン株式会社

東京都港区港南一丁目6番41号

(72) 発明者 榊原 巨規

東京都港区港南一丁目6番41号 三菱レイ  
ヨン株式会社内

(72) 発明者 櫻井 英三

愛知県名古屋市東区砂田橋四丁目1番60号  
三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内

(74) 代理人 100091948

弁理士 野口 武男

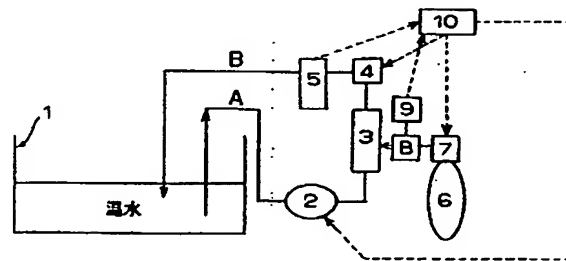
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 人工炭酸泉の炭酸ガス濃度測定方法、その制御方法および人工炭酸泉製造装置

(57) 【要約】

【課題】 簡便な方法により温水中に溶解した炭酸ガス濃度を求めることができ、所望の炭酸ガス濃度の温水、即ち、人工炭酸泉として有効な飽和炭酸ガス濃度以上である1000ppmから1400ppmの炭酸泉を簡便に製造する装置を提供する。

【解決手段】 炭酸ガス溶解器とpH測定装置を備えた人工炭酸泉製造装置において、飽和炭酸ガス濃度以下となる一定量の炭酸ガスを人工炭酸泉にする温水中に溶解して、溶解後の温水のpH値と溶解させた炭酸ガス溶解量から炭酸ガス濃度を算出し、pH値と炭酸ガス濃度との相関関係式を算出し、算出して求めた相関関係式を用いて目標とする炭酸ガス濃度の人工炭酸泉を製造する。



1…浴槽

2…撹拌ポンプ

3…炭酸ガス溶解器

4…温水圧調整器

5…pH測定器

6…炭酸ガスポンプ

7…炭酸ガス圧調整器

8…流量調整器

9…後算流量計

10…制御装置

A…導管

B…戻し管

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 異種の温水使用ごとに、所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回溶解すること、

炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定すること、  
前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出すること、  
算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出すること、

同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉のpH値を測定すること、及び前記相関関係式から前記人工炭酸泉のpH値に対応する炭酸ガス濃度を算出すること、を特徴とする人工炭酸泉の炭酸ガス濃度測定方法。

【請求項2】 異種の温水使用ごとに、所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回溶解すること、

炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定すること、  
前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出すること、  
算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出すること、

同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出すること、及び前記人工炭酸泉のpH値を上記相関関係式から算出したpH値となるよう炭酸ガスの溶解量を制御すること、を特徴とする人工炭酸泉の炭酸ガス濃度制御方法。

【請求項3】 温水に所望量の炭酸ガスを溶解させる人工炭酸泉製造装置であって、  
流量調整器を備えた炭酸ガス供給源と、  
炭酸ガスを温水に溶解する炭酸ガス溶解器と、  
炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定するpH測定装置と、  
ガス流量調整器を制御する制御装置とを備えてなり、前記制御装置は、

人工炭酸泉の目標炭酸ガス濃度を設定するステップと、  
炭酸ガス供給源を制御して所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回炭酸ガス溶解器に供給するステップと、  
前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出するステップと、  
算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出するステップと、

同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出するステップと、  
前記人工炭酸泉のpH測定器における測定値が上記相関

関係式から算出したpH値となるよう前記ガス流量調整器を制御するステップと、を含んでなることを特徴とする人工炭酸泉製造装置。

【請求項4】 温水に所望量の炭酸ガスを溶解させる人工炭酸泉製造装置であって、  
炭酸ガス圧調整器を備えた炭酸ガス供給源と、  
中空糸膜を介して炭酸ガスを温水に溶解する炭酸ガス溶解器と、

炭酸ガス溶解器における温水圧を調整する温水圧調整器とを備えてなり、

炭酸ガス圧及び温水圧を炭酸ガス圧調整器及び温水圧調整器の調整により飽和炭酸ガス濃度以上の人工炭酸泉が得られる圧力としたことを特徴とする人工炭酸泉製造装置。

【請求項5】 前記温水圧調整器の調整により前記温水圧を0.1Mpa以上に保持することを特徴とする請求項4記載の人工炭酸泉製造装置。

【請求項6】 前記温水圧調整器が前記炭酸ガス溶解器の下流側に設けた除菌フィルターであることを特徴とする請求項4又は請求項5記載の人工炭酸泉製造装置。

【請求項7】 更に炭酸ガス供給源に設けた流量調整器を有してなり、

上記温水圧調整器、上記炭酸ガス圧調整器及び前記流量調整器を制御する制御装置は、

人工炭酸泉の目標炭酸ガス濃度を設定するステップと、  
炭酸ガス供給源を制御して所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回炭酸ガス溶解器に供給するステップと、

前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出するステップと、  
算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出するステップと、

同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出するステップと、

pH測定器の測定値が上記相関関係式から算出したpH値となるよう前記ガス流量調整器を制御するステップと、を含んでなることを特徴とする請求項4乃至6記載の人工炭酸泉製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、温水に炭酸ガスを溶解することにより人工的に生成した炭酸泉の炭酸ガス濃度を測定する方法、当該炭酸泉の炭酸ガス濃度を所望の濃度に制御する方法、および当該炭酸泉の人工炭酸泉製造装置に関し、特に簡易な手段で行う炭酸ガス濃度を測定する方法、当該方法を用いて人工炭酸泉の炭酸ガス濃度を所望の濃度に制御する方法および好適な人工炭酸泉を製造する装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】炭酸泉はその強力な血管拡張作用により末梢血液循環不全に優れた効果を発揮すると考えられていることから、広く治療や湯治に使用されている。これまでは天然より湧出した炭酸泉が使用されていたが、優れた人工炭酸泉製造方法の開発により現在では広く内科治療の一つとして人工炭酸泉治療が使用されるに至っている。人工炭酸泉治療における臨床研究成果から、治療に使用し得る炭酸ガスの有効濃度は1000ppm以上1400ppm近傍で最大になることが明らかになってきている。また、疾患の重傷度や治療の継続期間により炭酸ガス濃度に対する応答性が異なることも示されてきており、実際の人工炭酸泉治療においては、患者に応じた炭酸ガスの適応濃度を設定することが必要となっている。

【0003】炭酸泉治療において炭酸ガス濃度を測定する方法としては、イオン電極式の炭酸ガス濃度計を用いる方法、あらかじめ測定したアルカリ度を事前にプログラム入力しpH測定により炭酸ガス濃度を測定する方法がある。しかし、イオン電極式の方法では測定結果を得るまでに数分を要し、測定毎に常に数分が必要なため短時間で測定結果を得ることが出来なかった。また、アルカリ度を事前にプログラム入力してpH測定により炭酸ガス濃度を測定する方法では、水質毎に異なるアルカリ度を事前にその都度測定する必要がある、他のイオンや塩類が混入した場合には再度アルカリ度を測定しなおす必要がある、これらの測定方法では、実用上の欠点を有していた。

【0004】一方、人工炭酸泉の製造方法としては、薬剤反応により生じた炭酸ガスの気泡を温水中に溶解させる方法（特開平2-270158号公報）、導管を用いて循環させた温水を導管の途中に設けた分散器内においてスタティックミキサと呼ばれる攪拌器で強制的に炭酸ガスと温水とを混合させる方法（特開昭63-242257号公報）、多層複合中空糸膜溶解器を使用する方法（三菱レイヨン・エンジニアリング社製「炭酸水製造装置MRESPA」）等がある。

【0005】いずれの炭酸ガス溶解方法でも、大気圧下での炭酸ガス溶解方法であることから効率的に飽和溶解度以上の炭酸ガス濃度に調整することは難しい。また、圧力タンクを使用することにより飽和溶解度以上にすることは技術的には可能であるが、大量の炭酸泉を得るためには装置を大型化する必要があると実際上採用し難い状況にある。

【0006】本発明の目的は、治療に有効とされている炭酸ガス濃度領域内にある人工炭酸泉の炭酸ガス濃度を簡便に測定すること、人工炭酸泉を上記炭酸ガス濃度領域内における所望の炭酸ガス濃度に制御する方法、さらには効率的に人工炭酸泉を製造する装置を提供することにある。

## 【0007】

【発明を解決するための手段・効果】上記目的は、以下の事項を備えた本件各請求項に係わる発明により効果的に達成される。

【0008】即ち、請求項1に係わる発明は、異種の温水使用ごとに、所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回溶解すること、炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定すること、前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出すること、算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出すること、同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉のpH値を測定すること、及び前記相関関係式から前記人工炭酸泉のpH値に対応する炭酸ガス濃度を算出すること、を特徴とする人工炭酸泉の炭酸ガス濃度測定方法にある。

【0009】この人工炭酸泉の炭酸ガス濃度測定方法では、炭酸ガス溶解前の所定量の温水に対して溶解させても飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回溶解させ、溶解させた毎にそのときの温水のpH値を測定する。このpH値を測定するに当たっては、飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを温水に対して溶解させており、溶解に使用した炭酸ガスが100%温水に溶解させることができる。また、温水の炭酸ガス濃度は供給した炭酸ガス量と温水量とから算出することができるので、所望量炭酸ガスを溶解させたときの温水の炭酸ガス濃度とそのときのpH値との関係を得ることができる。算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値を用いて後述する炭酸ガス濃度とpH値との相関関係式を導出する。この相関関係式が人工炭酸泉を製造するために使用する温水の相関関係式を導出したときの条件下における特有の相関関係式となっている。この相関関係式を用いることにより、任意の炭酸ガス量を溶解させたときの人工炭酸泉の炭酸ガス濃度をこの相関関係式から求めたpH値として表すことができる。従って、人工炭酸泉の炭酸ガス濃度は、この相関関係式を用いることによりを簡便に求めることができるのである。

【0010】請求項2に係わる発明は、異種の温水使用ごとに、所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回溶解すること、炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定すること、前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出すること、算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出すること、同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出すること、及び前記人工炭酸泉のpH値を上記相関関係式から算出したpH値となるよう炭酸ガスの溶解量を制御すること、を特徴とする人工炭酸泉の炭酸ガス濃度制御方法にある。

【0011】この人工炭酸泉の炭酸ガス濃度制御方法では、請求項1に記載の人工炭酸泉の炭酸ガス濃度測定方法を利用することによって、人工炭酸泉の炭酸ガス濃度を所望の濃度に制御するものである。そのために、人工炭酸泉の炭酸ガス濃度制御を行う上で、炭酸ガス濃度を直接測定する代わりに、相関関係式を用いて所望の炭酸ガス濃度に対応したpH値を算出し、このpH値、即ち人工炭酸泉としての所望の炭酸ガス濃度、となるように炭酸ガス溶解器における炭酸ガス溶解量を制御するものである。従って、簡便な方法により人工炭酸泉の炭酸ガス濃度を所望の値に制御し得るものである。

【0012】請求項3に係わる発明は、温水中に所望量の炭酸ガスを溶解させる人工炭酸泉製造装置であって、流量調整器を備えた炭酸ガス供給源と、炭酸ガスを温水中に溶解する炭酸ガス溶解器と、炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定するpH測定装置と、ガス流量調整器を制御する制御装置とを備えてなり、前記制御装置は、人工炭酸泉の目標炭酸ガス濃度を設定するステップと、炭酸ガス供給源を制御して所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回炭酸ガス溶解器に供給するステップと、前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出するステップと、算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出するステップと、同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出するステップと、前記人工炭酸泉のpH測定器における測定値が上記相関関係式から算出したpH値となるよう前記ガス流量調整器を制御するステップと、からなることを特徴とする人工炭酸泉製造装置にある。

【0013】温水中に所望の炭酸ガスを溶解させる人工炭酸ガス製造装置において、流量調整器を備えた炭酸ガス供給源と、炭酸ガスを温水中に溶解する炭酸ガス溶解器と、炭酸ガス溶解後の温水のpH値を測定するpH測定装置と炭酸ガス流量調整器を制御する制御装置とを備えたものであって、制御装置により請求項2に記載した人工炭酸泉の炭酸ガス濃度制御方法を行わせて所望の炭酸ガス濃度の人工炭酸泉を製造する人工炭酸泉製造装置である。

【0014】炭酸泉として使用する温水に関する炭酸ガス濃度とpH値の相関関係式を求めておき、この相関関係式を用いて目標とする炭酸ガス濃度に対応するpH値を算出し、この目標とするpH値に温水がなるように炭酸ガス溶解器に炭酸ガスを供給するガス流量調整器を制御するものであって、簡便にして所望の炭酸ガス濃度になった炭酸泉を製造することができるものである。

【0015】請求項4に係わる発明は、温水中に所望量の炭酸ガスを溶解させる人工炭酸泉製造装置であって、炭酸ガス圧調整器を備えた炭酸ガス供給源と、中空糸膜を

介して炭酸ガスを温水中に溶解する炭酸ガス溶解器と、炭酸ガス溶解器における温水圧を調整する温水圧調整器とを備えてなり、炭酸ガス圧及び温水圧を炭酸ガス圧調整器及び温水圧調整器の調整により飽和炭酸ガス濃度以上の人工炭酸泉が得られる圧力としたことを特徴とする人工炭酸泉製造装置にある。

【0016】この人工炭酸泉製造装置では、中空糸膜を用いた炭酸ガス溶解器において、中空糸膜表面の接触部と中空糸膜の中空内の一方に温水を他方に炭酸ガスを流通させ、中空糸膜におけるガス交換膜としての作用を利用して温水中に炭酸ガスを溶解させるときに、炭酸ガス圧及び温水圧をそれぞれ炭酸ガス圧調整器及び温水圧調整器を調整することによって飽和炭酸ガス濃度以上の人工炭酸泉が得られる圧力としたことを特徴としている。このため、飽和炭酸ガス濃度以上に炭酸ガスが溶解した人工炭酸泉を中空糸膜によるガス交換膜を介して製造することができるものである。

【0017】請求項5に係わる発明は、前記温水圧調整器の調整により前記温水圧を0.1Mpa以上に保持することを特徴とする請求項4記載の人工炭酸泉製造装置にある。この人工炭酸泉製造装置では、請求項4における人工炭酸泉製造装置において炭酸ガス溶解器に供給する温水の圧力を温水圧調整器の調整により0.1Mpa以上に保持した状態で炭酸ガスの溶解を行うものであり、これにより効率的に温水に対して飽和炭酸ガス濃度以上の炭酸ガスを溶解できるものである。

【0018】請求項6に係わる発明は、前記温水圧調整器が前記炭酸ガス溶解器の下流側に設けた除菌フィルターであることを特徴とする請求項4又は請求項5記載の人工炭酸泉製造装置にある。

【0019】この人工炭酸泉製造装置では、炭酸ガス溶解器の下流側に除菌フィルターを設けることにより温水圧力調整器としての機能も併せ持たせ、一つの部材で温水圧の調整および温水の除菌を行わせるものである。

【0020】請求項7に係わる発明は、更に炭酸ガス供給源に設けた流量調整器を有してなり、上記温水圧調整器、上記炭酸ガス圧調整器及び前記流量調整器を制御する制御装置は、人工炭酸泉の目標炭酸ガス濃度を設定するステップと、炭酸ガス供給源を制御して所定量の温水に飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスを少なくとも1回炭酸ガス溶解器に供給するステップと、前記炭酸ガスの溶解量と前記温水の量とから炭酸ガス濃度を算出するステップと、算出した炭酸ガス濃度と測定したpH値とから相関関係式を導出するステップと、同相関関係式にある温水に所望量の炭酸ガスを更に溶解させて得られる人工炭酸泉に対する所望の炭酸ガス濃度とするためのpH値を前記相関関係式を用いて算出するステップと、pH測定器の測定値が上記相関関係式から算出したpH値となるよう前記ガス流量調整器を制御するステップと、からなることを特徴とする請求項4乃至6記載

の人工炭酸泉製造装置にある。

【0021】この人工炭酸泉製造装置では、炭酸ガス供給源に流量調整器を更に設けると共に、温水圧調整器、炭酸ガス圧調整器及び新たに設けた流量調整器を制御装置により制御し、その制御としては請求項3に記載の人工炭酸泉製造装置における制御装置の制御と同様の制御を行わせるものである。これにより飽和炭酸ガス濃度以上の所望の炭酸ガス濃度となった人工炭酸泉を効率的に製造することができるものである。

【0022】

【発明の実施形態】以下、本発明の代表的な実施の形態について図面を参照しながら具体的に説明する。

【0023】図1は、本発明における人工炭酸泉製造装置の構成図である。図2は、pH値と炭酸ガス濃度から求めた相関関係式と実測値との関係を示した図である。図3は、多層複合中空糸膜の構成図である。図4は、多層複合中空糸膜を用いて温水に対して炭酸ガスが溶解する概念図である。

【0024】図1に示すように、浴槽1内の温水を循環させるための導管Aおよび戻し管Bと、浴槽1内の温水を導管Aから温水を吸引し炭酸ガスを溶解した温水を戻し管Bを介して浴槽1に排出する循環ポンプ2と、導管Aの温水に炭酸ガスを溶解する炭酸ガス溶解器3と、炭酸ガス溶解器3の下流側に設けられた温水圧調整器4と、温水圧調整器4の下流側に設けられたpH測定装置5と、炭酸ガス溶解器3へ炭酸ガスを供給する炭酸ガスボンベ6と、炭酸ガスボンベ6から供給される炭酸ガスの圧力を調整する炭酸ガス圧調整器7と、炭酸ガス圧調整器7から排出される炭酸ガス流量を調整する流量調整器8と、流量調整器からの流量を測定する積算流量計9と、積算流量計9からの測定値と循環ポンプの吐出量とから炭酸ガス溶解器において炭酸ガスを溶解した温水に溶存する炭酸ガス濃度を演算しこの演算した炭酸ガス濃度とpH測定装置で測定したpH値とから炭酸ガス濃度とpH値との相関関係式を算出しpH測定装置内を流れる温水の溶存する炭酸ガス濃度の表示を行い、また温水圧調整器と炭酸ガス圧調整器への圧力制御および流量調整器の流量制御さらには循環ポンプの制御を行う制御信号を発信する制御装置10とにより構成されている。なお、炭酸ガス供給源としては、炭酸ガスボンベ、炭酸ガス圧調整器及び流量調整器から構成されているが、炭酸\*

$$pH = \log \left[ \left( \text{炭酸水素塩の濃度} / \text{炭酸ガス濃度} \right) * \left( 1 / \text{炭酸の解離定数} \right) \right] \cdots \text{式(1)}$$

【0029】他のイオンの存在がほとんど無視できる真水であれば、1つの炭酸ガス濃度とそのときのpH値だけからでも相関関係式を求めることができ、例えば、2\*

$$pH = \log \left[ \text{炭酸水素塩の濃度} * 0.203 \times 10^7 \text{ガス濃度} \right] \cdots \text{式(2)}$$

【0030】相関関係式の導出に当たっては、炭酸ガス溶解前の所定量の温水に所望量の炭酸ガスを溶解させ、そのときの炭酸ガス濃度とpH値とを用いて相関関

\* ガス圧調整器と流量調整器は必要により一方だけを使用することができるし、炭酸ガス圧調整器と流量調整器の配置を図1の場合と逆にすることもできる。

【0025】図1においては、温水圧調整器を炭酸ガス溶解器の下流側に配置した構成を示しているが、温水圧調整器を炭酸ガス溶解器の上流側に設けることも、循環ポンプを温水圧調整器として使用することもできるし、炭酸ガス溶解器の上流側と下流側の双方に設けてもよい。また、pH測定装置は、温水圧調整器の下流側に設けた構成を記載しているが、温水圧調整器の上流側に配置してもよく、炭酸ガス溶解後のpH値が測定できる場所であればよいことは言うまでもない。

【0026】この実施例では温水圧調整器4として、ろ過フィルターを用いた例を示しているが、ろ過フィルターの代わりに制御弁等公知の圧力調整手段を採用したり、循環ポンプの吐出圧を制御することにより炭酸ガス溶解器へ流入される温水圧を調整することができる。また、ろ過フィルターを用いる場合には、循環ポンプの吐出圧との関係で炭酸ガス溶解器へ流入される温水圧が所望の圧力以上となるろ過フィルターを採用することで圧力調整器としての機能を行わせることができる。

【0027】炭酸ガス濃度とpH値の相関関係式の算出は、最初に溶解する炭酸ガス溶解量が飽和炭酸ガス濃度以下であることが必要であり、このとき炭酸ガスを全て温水に溶解させることができる。一般的には、炭酸ガス濃度が低濃度であるほど溶解効率は高くpH値の測定精度を上げることは可能であるが、炭酸ガスの濃度が低すぎると炭酸ガス溶解量そのものの定量に誤差が生じるため、溶解方法や水温にもよるが、炭酸ガスを溶解させようとする温水の水温における飽和溶解度の10～70%であることが望ましい。炭酸ガス溶解前の所定量の温水に対して溶解させても飽和炭酸ガス濃度以下となる所望量の炭酸ガスは少なくとも1回溶解させ、このとき供給した炭酸ガス量と温水量とから算出した温水の炭酸ガス濃度と測定した温水のpH値を用いて相関関係式を導出できる。異なる炭酸ガス濃度でのpH値を使っても相関関係式を導出できる。

【0028】相関関係式は2つの異なる濃度におけるそれぞれのpH値を測定することにより次式より求めることができる。

※ 5℃における炭酸の解離定数で近似した、いわゆるT i l l m a n n の式を用いて次式により求められる。

係式を導出できるし、複数の炭酸ガス濃度での炭酸ガス濃度とpH値とから一つの相関関係式を導出することもできる。なお、複数の炭酸ガス濃度で行う場合には、そ



のときの炭酸ガス濃度を決定することができるのなら、温水としては炭酸ガス溶解前の温水を常に使用しなくてもよいことは言うまでもない。

【0031】相関関係式を求めるに当たっては、試料用の温水としたものを別途用意してこれを使用してもよいし、浴槽から循環中の温水をそのまま使用してもよく、相関関係式を求めるための炭酸ガス濃度とpH値とを求めることができるのであればどのような形態であってもよい。上記式(1)においては、温水の炭酸ガス濃度を複数回変えた条件下での炭酸ガス濃度とpH値とを用いており、複数の炭酸ガス濃度の対応したpH値を用いて相関関係式を導出することにより、測定条件や共存イオンにより変動する解離定数、pH測定装置におけるpH測定電極の感度低下に起因する校正誤差をも包括した関係式として得ることができ、より正確な相関関係式を得ることができる。

【0032】図2に示すように、上述の(1)式を用いて、異なる炭酸ガス濃度でのpH値(グラフ右の2つの■点)から求めた炭酸ガス濃度とpH値の相関関係式が片対数グラフにおける直線として示されている。また、別途実測した炭酸ガス濃度とそのときのpH値の実測値が▼点として同片対数グラフ上に示している。また、飽和炭酸ガス濃度以上における相関関係式から算出したpH値(グラフ左の■点)このグラフから分かる通り、相関関係式が実測値を満足していることが分かる。このことから、上記式を用いて相関関係式を求めこの関係式に基づいて、所定のpH値に対応した炭酸ガス濃度(炭酸ガス濃度)を精度よく得ることができることが分かる。従って、この相関関係式を用いれば、所望の炭酸ガス濃度を有する温水を得るためには、そのときのpH値がいくらにすればよいか簡単に得ることができる。

【0033】図3に示すように、中空糸膜としては、多層構造の複合中空糸膜を用いることができる。この実施例のものは、中間の非多孔質薄膜層12を内層11と外層13でサンドイッチ状に挟みこんだ三層構造の中空糸膜を示している。中間の非多孔質薄膜層12は、ガス透過性の高い素材で形成されており、水等の液体は透過させずに炭酸ガス等のガス成分のみを透過させるガス交換膜としての機能を有している。また、この中間層である非多孔質薄膜層12の厚みは非常に薄く、約0.5μmに形成されており、このため、非多孔質であってもガス透過性が高く、ガス相/液相間のガス交換速度にほとんど影響しない膜となっている。

【0034】さらに、中間層の非多孔質薄膜層12を挟んで内層11と外層13の多孔質層は機械的強度の高い結晶性のポリオレフィン(ポリエチレン)で形成されているため、中間層である非多孔質薄膜層12の強度を支持し、表面を保護する構造となっている。中空糸膜として上記記載した数値等は一つの例示であって、本願発明を行うことができる炭酸ガス溶解器として中空糸膜であ

ればその中空糸膜を使用することができる。

【0035】図4に示すように、図3に示すような中空糸膜からなる炭酸ガス溶解器において、中空糸膜表面に接触して炭酸ガスを供給し該中空糸膜の中空内を流通する温水に対して炭酸ガスを中間層の非多孔質薄膜層12を介して溶解させる。あるいは、中空内に炭酸ガスを供給し中空糸膜表面に接触させながら流通させた温水に対して炭酸ガスを中間層の非多孔質薄膜層12を介して溶解させることもできる。

【0036】炭酸ガス溶解においては、大気圧下での炭酸ガス分圧が1以下の領域であれば、炭酸ガスは速やかに温水中に溶解するため気-液接触面積の大きい中空糸膜を使用した炭酸ガス溶解器を用いることにより、効率的な溶解を行うことが可能である。しかし、炭酸泉として有効とされる炭酸ガス濃度が1000ppmから1400ppmのものは過飽和状態にある。効率的な溶解を実施するためにはおのずと溶解方法を変更する必要がある。少なくとも、炭酸ガス濃度が飽和溶解濃度(40℃の場合には、973ppm)に到達した時点においては炭酸ガス溶解器内の温水圧を上昇させなおかつ炭酸ガス圧力を温水圧以上に調整することによって、気体-液体接触面での局所的な圧注入状態が得られ、過飽和状態となった人工炭酸泉を製造することができる。上昇させる温水圧は目標とする過飽和状態の炭酸ガス濃度にもよるが、少なくとも0.1Mpa以上の圧力にすることが好ましい。

【0037】また、このときの供給する炭酸ガスの圧力は、少なくともこのときの温水圧以上の圧力が必要である。温水圧を上昇させる手段としては、オリフィス式の弁を使用することもできるし、中空糸膜による除菌ろ過フィルターを炭酸ガス溶解器の下流側に設ければ、温水圧を上昇させると共に温水を除菌することができ清潔な状態にて人工炭酸泉を使用することができる。

【0038】

【実施例】35℃の温水10Lを浴槽に入れ、循環ポンプ(5L/min)、多層構造の複合中空糸膜を用いた炭酸ガス溶解器(三菱レイヨン社製)および第1の水圧調整器、炭酸ガスポンプ、炭酸ガス圧調整器、pH測定装置、積算流量計、制御装置を図1に示す順序にて連結し、炭酸ガス圧1.5Mpaにて循環ポンプを運転した。次いで、運転時間2分後、3分後のpH値から相関関係式 $pH = \log [2.98 \times 10^7 / \text{炭酸ガス濃度}]$ を算出した。さらに炭酸ガス溶解器の下流側に中空糸膜ろ過フィルター(三菱レイヨン社製)を設置することにより、温水圧を0.2Mpa、炭酸ガス圧を0.3Mpaとした後、10分後における温水の炭酸ガス濃度を相関関係式より求めたところ1404ppmの値を得ることができた。このときの炭酸ガス濃度を実測したところ1405ppmあることが分かった。(表1参照)

【0039】

【表1】

運転時間	CO <sub>2</sub> 消費量 (g)	未溶解ガス量 (g)	CO <sub>2</sub> 濃度 (mg/l)	pH	相関式によるCO <sub>2</sub> 濃度 (mg/l)	水圧 (Mpa)	ガス供給圧 (Mpa)
2min	3.75	0	375	4.91	—	—	0.15
3min	5.77	0	577	4.72	572	—	0.15
10min	18.56	2.51	1405	4.33	1404	0.2	0.3

【0040】以上から明らかなように、簡便な方法により温水に溶解した炭酸ガス濃度を求めることができると共に所望の飽和炭酸ガス濃度以上の人工炭酸泉、即ち、人工炭酸泉として有効な炭酸ガス濃度である1000ppmから1400ppmの炭酸泉を簡便に調整、製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明における人工炭酸泉製造装置の構成図である。

【図2】pH値と炭酸ガス濃度から求めた相関関係式と実測値との関係を示した図である。

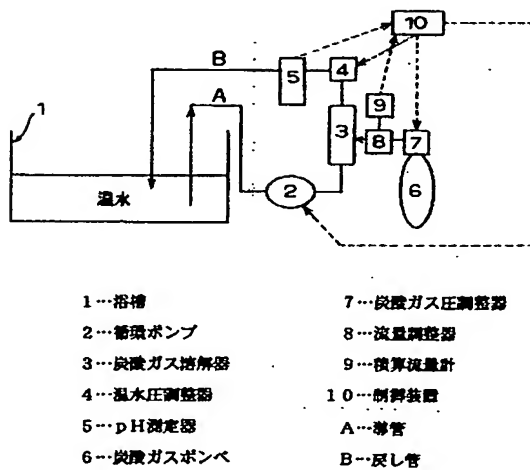
【図3】多層複合中空糸膜の構成図である。

【図4】多層複合中空糸膜を用いて温水に対して炭酸ガスが溶解する概念図である。

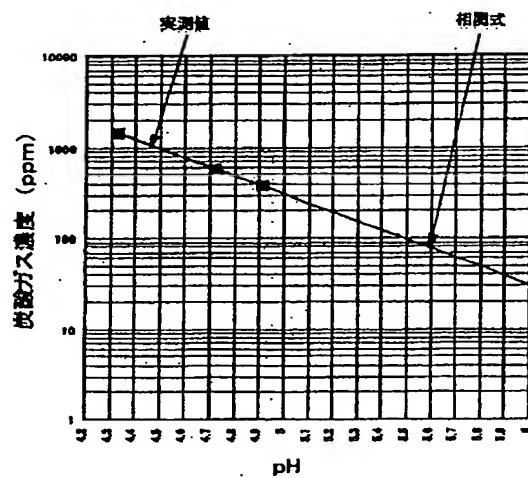
\*【符号の説明】

- 1…浴槽
- 2…循環ポンプ
- 3…炭酸ガス溶解器
- 4…温水圧調整器
- 5…pH測定器
- 6…炭酸ガスポンペ
- 7…炭酸ガス圧調整器
- 8…流量調整器
- 9…積算流量計
- 10…制御装置
- A…導管
- B…戻し管

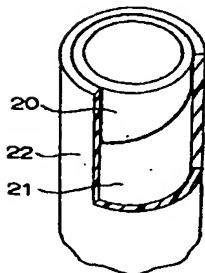
【図1】



【図2】

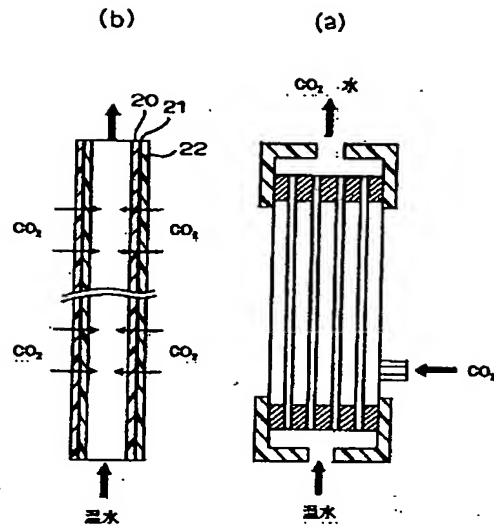


【図3】





【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターマード (参考)
// A 6 1 K 33/00		A 6 1 P 9/08	
A 6 1 P 9/08		43/00	1 2 5
43/00	1 2 5	G 0 1 N 27/46	3 5 3 Z
<hr/>			
(72)発明者 田阪 広		(72)発明者 讃井 克弥	
愛知県名古屋市中区砂田橋四丁目1番60号		東京都港区港南一丁目6番41号 三菱レイ	
三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内		ヨン・エンジニアリング株式会社内	
(72)発明者 長坂 好倫		Fターム(参考) 2G042 AA01 BB05 CA02 CB03 DA10	
東京都港区港南一丁目6番41号 三菱レイ		EA01 GA01 GA02	
ヨン・エンジニアリング株式会社内		4C086 AA01 HA06 HA16 HA21 MA02	
		MA05 NA04 ZA39 ZC71	
		4C094 AA01 BB15 DD06 FF20 GG03	
		4G035 AA05 AE02 AE13	